

(12) NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES  
PATENTWESEN (PCT) VERÖFFENTLICHTE INTERNATIONALE MELDUNG

(19) Weltorganisation für geistiges Eigentum  
Internationales Büro



(43) Internationales Veröffentlichungsdatum  
22. April 2004 (22.04.2004)

PCT

(10) Internationale Veröffentlichungsnummer  
WO 2004/034498 A3

(51) Internationale Patentklassifikation<sup>7</sup>: H01M 8/10,  
B01D 67/00, C08J 5/22

(US). BENICEWICZ, Brian [US/US]; 19 Loudon  
Heights North, Loudonville, NY 1221 (US). WEBER,  
Mathias [DE/DE]; Konrad-Adenauer-Ring 54, 65428  
Rüsselsheim (DE).

(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP2003/010903

(22) Internationales Anmeldedatum:  
2. Oktober 2003 (02.10.2003)

(74) Anwälte: DÖRR, Klaus usw.; Luderschmidt, Schüler  
& Partner, Industriepark Höchst, Gebäude F 821, 65926  
Frankfurt (DE).

(25) Einreichungssprache: Deutsch

(81) Bestimmungsstaaten (*national*): BR, CA, CN, JP, KR,  
MX, US.

(26) Veröffentlichungssprache: Deutsch

(30) Angaben zur Priorität:  
102 46 372.7 4. Oktober 2002 (04.10.2002) DE

(84) Bestimmungsstaaten (*regional*): europäisches Patent (AT,  
BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR,  
HU, IE, IT, LU, MC, NL, PT, RO, SE, SI, SK, TR).

(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme  
von US): PEMEAS GmbH [DE/DE]; 65926 Frankfurt  
am Main (DE).

Veröffentlicht:

- mit internationalem Recherchenbericht
- vor Ablauf der für Änderungen der Ansprüche geltenden  
Frist; Veröffentlichung wird wiederholt, falls Änderungen  
eintreffen

(72) Erfinder; und

(75) Erfinder/Anmelder (nur für US): BAURMEISTER,  
Jochen [DE/DE]; Hauptstrasse 67, 65817 Eppstein (DE).  
KUNDLER, Isabel [DE/DE]; Friedrich-Stolze-Strasse  
17, 61462 Königstein (DE). PADBERG, Christoph  
[DE/DE]; Lahnstrasse 2, 65195 Wiesbaden (DE). UEN-  
SAL, Oemer [TR/DE]; Südring 387, 55128 Mainz (DE).  
KEIFER, Joachim [DE/DE]; Scheidener Strasse 2,  
66679 Losheim am See (DE). CALUNDANN, Gordon  
[US/US]; 1275 Rock Avenue, North Plainfield, NJ 07060

(88) Veröffentlichungsdatum des internationalen  
Recherchenberichts: 12. Mai 2005

Zur Erklärung der Zweibuchstaben-Codes und der anderen Ab-  
kürzungen wird auf die Erklärungen ("Guidance Notes on Co-  
des and Abbreviations") am Anfang jeder regulären Ausgabe der  
PCT-Gazette verwiesen.

(54) Title: PROTON-CONDUCTING POLYMER MEMBRANE THAT CONTAINS POLYAZOLES AND IS COATED WITH A  
CATALYST LAYER, AND APPLICATION THEREOF IN FUEL CELLS

(54) Bezeichnung: MIT EINER KATALYSATORSCHICHT BESCHICHTETE PROTONENLEITENDE POLYMERMEMBRAN  
ENTHALTEND POLYAZOLE UND DEREN ANWENDUNG IN BRENNSTOFFZELLEN

(57) Abstract: The invention relates to a proton-conducting polymer membrane that contains polyazoles, is coated with a catalyst layer, and is obtained by a method comprising the steps of A) producing a mixture containing polyphosphoric acid, at least one polyazole (polymer A), and/or at least one or several compounds that are suitable for forming polyazoles under the influence of heat according to step B), B) heating the mixture obtained in step A) to temperatures of up to 400 °C under inert gas, C) applying a layer to a support by using the mixture according to step A) and/or B), D) treating the membrane formed in step C) until said membrane is self-supporting, and E) applying at least one coating containing a catalyst to the membrane formed in step C) and/or step D).

(57) Zusammenfassung: Die vorliegende Erfindung betrifft mit einer Katalysatorschicht beschichtete protonenleitende Polymermembran enthaltend Polyazole erhältlich durch ein Verfahren umfassend die Schritte A) Herstellung einer Mischung umfassend Polyphosphorsäure, mindestens ein Polyazol (Polymer A) und/oder mindestens ein oder mehrere Verbindungen, die unter Einwirkung von Wärme gemäss Schritt B) zur Bildung von Polyazolen geeignet sind, B) Erwärmen der Mischung erhältlich gemäss Schritt A) unter Inertgas auf Temperaturen von bis zu 400°C, C) Aufbringen einer Schicht unter Verwendung der Mischung gemäss Schritt A) und/oder B) auf einem Träger, D) Behandlung der in Schritt C) gebildeten Membran bis diese selbsttragend ist, E) Aufbringen mindestens einer Beschichtung enthaltend einen Katalysator auf die in Schritt C) und/oder in Schritt D) gebildete Membran.

WO 2004/034498 A3

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No  
PCT/EP 03/10903

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER  
IPC 7 H01M8/10 B01D67/00 C08J5/22

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)  
IPC 7 H01M B01D C08J

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

EPO-Internal, WPI Data, PAJ

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
P, X	WO 02/081547 A (CELANESE VENTURES GMBH; CALUNDANN, GORDON; SANSONE, MICHAEL, J; UENSAL) 17 October 2002 (2002-10-17) examples 1-3	1, 3, 10-25, 31, 32
P, X	WO 02/088219 A (CELANESE VENTURES GMBH; CALUNDANN, GORDON; SANSONE, MICHAEL, J; UENSAL) 7 November 2002 (2002-11-07) examples 1-16	1-3, 10-25, 31, 32
P, X	WO 03/022412 A (CELANESE VENTURES GMBH; CALUNDANN, GORDON; SANSONE, MICHAEL, J; UENSAL) 20 March 2003 (2003-03-20) page 16, line 15 - line 19; examples -/-	1-3, 10-25, 31, 32

☒ Further documents are listed in the continuation of box C.

☒ Patent family members are listed in annex.

### \* Special categories of cited documents:

- \*A\* document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- \*E\* earlier document but published on or after the international filing date
- \*L\* document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- \*O\* document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- \*P\* document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

- \*T\* later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
- \*X\* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
- \*Y\* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.
- \*G\* document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

28 February 2005

Date of mailing of the international search report

23/03/2005

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Koessler, J-L

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

PCT/EP 03/10903

C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
P,X	WO 03/007411 A (MUELLER, JOERG; MEX, LAURENT) 23 January 2003 (2003-01-23)  examples	1,3, 10-25, 31,32
X	WO 02/38650 A (TOYO BOSEKI KABUSIKI KAISHA; SAKAGUCHI, YOSHIMITSU; KITAMURA, KOTA; TA) 16 May 2002 (2002-05-16) abstract	1-6, 8-25,31, 32
E	-& EP 1 354 907 A (TOYO BOSEKI KABUSHIKI KAISHA) 22 October 2003 (2003-10-22)  -----	1-6, 8-25,31, 32

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Publication No

PCT/EP 03/10903

Patent document cited in search report		Publication date	Patent family member(s)	Publication date
WO 02081547	A	17-10-2002	DE 10117687 A1	17-10-2002
			BR 0208728 A	20-07-2004
			CA 2443849 A1	17-10-2002
			WO 02081547 A1	17-10-2002
			EP 1379572 A1	14-01-2004
			MX PA03009187 A	17-02-2004
			US 2004127588 A1	01-07-2004
WO 02088219	A	07-11-2002	DE 10117686 A1	24-10-2002
			BR 0208795 A	09-03-2004
			CA 2443541 A1	07-11-2002
			WO 02088219 A1	07-11-2002
			EP 1379573 A1	14-01-2004
			MX PA03009184 A	17-02-2004
			US 2004096734 A1	20-05-2004
WO 03022412	A	20-03-2003	DE 10144815 A1	27-03-2003
			CA 2459775 A1	20-03-2003
			WO 03022412 A2	20-03-2003
			EP 1427517 A2	16-06-2004
WO 03007411	A	23-01-2003	DE 10133738 A1	06-02-2003
			CA 2448447 A1	23-01-2003
			WO 03007411 A2	23-01-2003
			EP 1497882 A2	19-01-2005
WO 0238650	A	16-05-2002	JP 2002146012 A	22-05-2002
			JP 2002146017 A	22-05-2002
			JP 2002201270 A	19-07-2002
			JP 2002206025 A	26-07-2002
			JP 2002212291 A	31-07-2002
			JP 2002208416 A	26-07-2002
			EP 1354907 A1	22-10-2003
			WO 0238650 A1	16-05-2002
			US 2004062969 A1	01-04-2004
EP 1354907	A	22-10-2003	JP 2002146012 A	22-05-2002
			JP 2002146017 A	22-05-2002
			JP 2002201270 A	19-07-2002
			JP 2002206025 A	26-07-2002
			JP 2002212291 A	31-07-2002
			JP 2002208416 A	26-07-2002
			EP 1354907 A1	22-10-2003
			US 2004062969 A1	01-04-2004
			WO 0238650 A1	16-05-2002

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

## INTERNATIONALER RESEARCHENBERICHT

Internationales Patentzeichen

PCT/EP 03/10903

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES  
IPK 7 H01M8/10 B01D67/00 C08J5/22

Nach der internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

## B. RESEARCHIERTE GEBIETE

Researchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)

IPK 7 H01M B01D C08J

Researchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die researchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

EPO-Internal, WPI Data, PAJ

## C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
P,X	WO 02/081547 A (CELANESE VENTURES GMBH; CALUNDANN, GORDON; SANSONE, MICHAEL, J; UENSAL) 17. Oktober 2002 (2002-10-17) Beispiele 1-3	1,3, 10-25, 31,32
P,X	WO 02/088219 A (CELANESE VENTURES GMBH; CALUNDANN, GORDON; SANSONE, MICHAEL, J; UENSAL) 7. November 2002 (2002-11-07) Beispiele 1-16	1-3, 10-25, 31,32
P,X	WO 03/022412 A (CELANESE VENTURES GMBH; CALUNDANN, GORDON; SANSONE, MICHAEL, J; UENSAL) 20. März 2003 (2003-03-20) Seite 16, Zeile 15 - Zeile 19; Beispiele -/-	1-3, 10-25, 31,32

☒ Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen☒ Siehe Anhang Patentfamilie

\* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :

\*A\* Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

\*E\* älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

\*L\* Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

\*O\* Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

\*P\* Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

\*T\* Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

\*X\* Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden

\*Y\* Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

\*Z\* Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

28. Februar 2005

Absendedatum des internationalen Recherchenberichts

23/03/2005

Name und Postanschrift der internationalen Recherchenbehörde

Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2

NL - 2280 HV Rijswijk

Tel (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,

Fax (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

Koessler, J-L

## INTERNATIONAL RESEARCH REPORT

International Aktzeichen

PCT/EP 03/10903

## C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
P,X	WO 03/007411 A (MUELLER, JOERG; MEX, LAURENT) 23. Januar 2003 (2003-01-23)  Beispiele	1,3, 10-25, 31,32
X	WO 02/38650 A (TOYO BOSEKI KABUSIKI KAISHA; SAKAGUCHI, YOSHIMITSU; KITAMURA, KOTA; TA) 16. Mai 2002 (2002-05-16) Zusammenfassung	1-6, 8-25,31, 32
E	-& EP 1 354 907 A (TOYO BOSEKI KABUSHIKI KAISHA) 22. Oktober 2003 (2003-10-22)	1-6, 8-25,31, 32



# INTERNATIONALER RESEARCHBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Patentzeichen

PCT/EP 03/10903

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
WO 02081547 A	17-10-2002	DE 10117687 A1	17-10-2002
		BR 0208728 A	20-07-2004
		CA 2443849 A1	17-10-2002
		WO 02081547 A1	17-10-2002
		EP 1379572 A1	14-01-2004
		MX PA03009187 A	17-02-2004
		US 2004127588 A1	01-07-2004
WO 02088219 A	07-11-2002	DE 10117686 A1	24-10-2002
		BR 0208795 A	09-03-2004
		CA 2443541 A1	07-11-2002
		WO 02088219 A1	07-11-2002
		EP 1379573 A1	14-01-2004
		MX PA03009184 A	17-02-2004
		US 2004096734 A1	20-05-2004
WO 03022412 A	20-03-2003	DE 10144815 A1	27-03-2003
		CA 2459775 A1	20-03-2003
		WO 03022412 A2	20-03-2003
		EP 1427517 A2	16-06-2004
WO 03007411 A	23-01-2003	DE 10133738 A1	06-02-2003
		CA 2448447 A1	23-01-2003
		WO 03007411 A2	23-01-2003
		EP 1497882 A2	19-01-2005
WO 0238650 A	16-05-2002	JP 2002146012 A	22-05-2002
		JP 2002146017 A	22-05-2002
		JP 2002201270 A	19-07-2002
		JP 2002206025 A	26-07-2002
		JP 2002212291 A	31-07-2002
		JP 2002208416 A	26-07-2002
		EP 1354907 A1	22-10-2003
		WO 0238650 A1	16-05-2002
		US 2004062969 A1	01-04-2004
EP 1354907 A	22-10-2003	JP 2002146012 A	22-05-2002
		JP 2002146017 A	22-05-2002
		JP 2002201270 A	19-07-2002
		JP 2002206025 A	26-07-2002
		JP 2002212291 A	31-07-2002
		JP 2002208416 A	26-07-2002
		EP 1354907 A1	22-10-2003
		US 2004062969 A1	01-04-2004
		WO 0238650 A1	16-05-2002

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**